

EUROPEAN PATENT OFFICE

Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 02040862
PUBLICATION DATE : 09-02-90

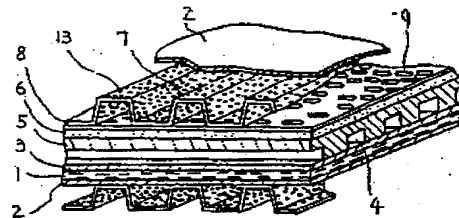
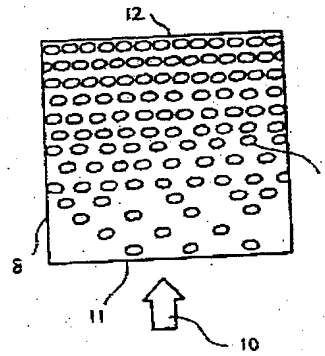
APPLICATION DATE : 29-07-88
APPLICATION NUMBER : 63188463

APPLICANT : HITACHI LTD;

INVENTOR : KOBAYASHI SHIGEYOSHI;

INT.CL. : H01M 8/02 H01M 8/06

TITLE : INTERNAL REFORMING TYPE FUEL CELL



ABSTRACT : PURPOSE: To make the temperature distribution within a battery uniform by extending the contact area of a fuel with a catalyst in the flow direction of the fuel.

CONSTITUTION: A perforated panel 13 having the ratio of the opening area successively extended from the fuel side inlet end 11 to the outlet end 12 is inserted between a fuel passage 7 and a catalyst 6. At a result, the contact time with the catalyst layer 6 per unit electrode area is shortened near the inlet part, and inversely lengthened near the outlet part. Thus, near the inlet of the fuel passage 7 having a high reforming reaction speed, the fuel reformed during then tends to reduce, while the reformed fuel tends to increase near the outlet having a small reforming reaction speed. As the endothermic amount is proportional to the reformed fuel flow rate, the reformed amount of the fuel is uniformalized in the flow direction of the fuel, and the endothermic amount is also uniformalized. Hence, the temperature distribution within a battery can be made uniform.

COPYRIGHT: (C)1990,JPO&Japio

⑨ 日本国特許庁(JP)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

平2-40862

⑬ Int. Cl.⁵

H 01 M 8/02
8/06

識別記号

R
R

庁内整理番号

7623-5H
7623-5H

⑭ 公開 平成2年(1990)2月9日

審査請求 未請求 請求項の数 3 (全5頁)

⑮ 発明の名称 内部改質型燃料電池

⑯ 特 願 昭63-188463

⑰ 出 願 昭63(1988)7月29日

⑱ 発 明 者 藤 村 秀 和 茨城県土浦市神立町502番地 株式会社日立製作所機械研
究所内

⑲ 発 明 者 伊 藤 昌 治 茨城県土浦市神立町502番地 株式会社日立製作所機械研
究所内

⑳ 発 明 者 小 林 成 嘉 茨城県土浦市神立町502番地 株式会社日立製作所機械研
究所内

㉑ 出 願 人 株式会社日立製作所 東京都千代田区神田駿河台4丁目6番地

㉒ 代 理 人 弁理士 小川 勝男 外2名

明 細 書

1. 発明の名称

内部改質型燃料電池

2. 特許請求の範囲

1. 燃料電極と酸化剤電極とを電解質板を介して対向するように配置した単位電池、上記燃料電極に対応する燃料通路、燃料通路内に設置された燃料改質触媒、および上記酸化剤電極に対応する酸化剤通路を有し、燃料、酸化剤をそれぞれ上記通路に供給して燃料を改質しながら発電を行う内部改質型燃料電池において、上記燃料と触媒との接触面積を上記燃料の流れ方向に向って拡大したことを特徴とする内部改質型燃料電池。

2. 燃料通路と触媒間の少なくとも一部に多孔板を介在せしめ、前記多孔板が介在する箇所における燃料と触媒との直接接触を前記多孔板の多孔を通してのみ許容するようにしたことを特徴とする請求項1記載の内部改質型燃料電池。

3. 多孔板の多孔の開口比を燃料通路の燃料の流

れ方向である入口から出口に向って拡大したことを特徴とする請求項2記載の内部改質型燃料電池。

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は、燃料電池構造、特に炭化水素などの燃料を電池内で改質しながら発電を行なう内部改質型燃料電池に関するものである。

(従来の技術)

従来の内部改質型燃料電池は、特開昭60-32255号に記載のように、燃料通路に充填された燃料改質触媒量を、燃料の流れ方向に向かつて増大しているため、改質反応速度の大きい燃料通路入口付近では触媒量が少ないため、改質反応が抑制され、逆に、反応速度の小さい出口付近では触媒量が多いため、反応速度は促進され、その結果、全体として燃料の流れ方向に改質反応が均一化し、従って吸熱量も均一化するため、電池内温度分布を一様化することができるというものであった。

また特開昭61-58174号の記載によれば触媒を

通路の入口端と出口端との間の長さ方向に沿った異なる位置において触媒の活性を変化させることが論じられており、具体的には、触媒の製造過程において触媒担体中の触媒濃度を調整する方法をとっている。

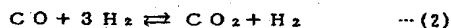
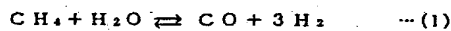
〔発明が解決しようとする課題〕

上記従来技術のうちのまず前者は、触媒量を流れに沿って変化させるために、燃料通路の幅や深さを流れ方向に向かって変化させなければならず、燃料通路が構造的に複雑なものとなり、従って製作コストの面で不利であつた。しかも、この構造では、触媒が燃料通路を充填しているために、電池の入口、出口間で大きな圧力損失を招くことになり、効率が落ちることや酸化剤ガス側との差圧コントロールが難しくなり、信頼性や電池運転上に関して問題があつた。またこの技術では充填方式以外の例えば板状触媒を通路に配置する方式には適用できない。さらには、触媒と燃料電極とが近接しているために、溶融塩による触媒活性の劣化も電池寿命の面からも問題があつた。

質触媒、および上記酸化剤電極に対応する酸化剤通路を有し、燃料、酸化剤をそれぞれ上記通路に供給して燃料を改質しながら発電を行う内部改質型燃料電池において、上記燃料と触媒との接触面積を上記燃料の流れ方向に向つて拡大したことを特徴とし、さらに具体的には、燃料通路と触媒間の少なくとも一部に多孔板を介在せしめ、前記多孔板が介在する箇所における燃料と触媒との直接接触を前記多孔板の多孔を通してのみ許容するようにし、かつ、多孔板の多孔の開口比を燃料通路の燃料の流れ方向である入口から出口に向つて拡大したことを特徴とするものである。

〔作用〕

燃料であるメタンの改質反応は、以下の式で表わされる。



特に(1)式が改質反応速度の律速段階であり、この反応により大きな吸熱作用が発生する。

さて、触媒層と接しながら燃料が改質反応を行

また、上記従来技術のうちの後者は触媒活性を位置によつて変化させるために、担体中の触媒濃度を調整する方法も改質触媒の製法が複雑となりその信頼性やコストの面で問題である。

本発明の目的は、単純な構成で、しかも製作コストが極めて安価にして、燃料改質反応の制御を行へ、その結果、電池内の温度分布を一様化することのできる、内部改質型燃料電池を提供することにある。

〔課題を解決するための手段〕

上記目的は、燃料入口端と、出口端との間で、流れ方向に沿って単位電極面積あたりの燃料と触媒との接触面積を変え、燃料通路と触媒との間に、多孔板を設け、その多孔の開口比を、入口から出口に向かって、大きくすることにより、達成される。

したがって、本発明の内部改質型燃料電池は、燃料電極と酸化剤電極とを電解質板を介して対向するように配置した単位電池、上記燃料電極に対応する燃料通路、燃料通路内に設置された燃料改

質反応部、ある任意の長さの燃料の通路を通過する際、その出口でのメタンの転化率は、(1)式を1次可逆反応と考えると、以下の式で表わされる。

$$X_{A0} = X_{A\infty} - (X_{A\infty} - X_{A1}) \cdot \exp\left(-\frac{K_a}{S_v \cdot X_{A\infty}}\right) \quad \cdots (3)$$

ここで、 $X_{A\infty}$ は、任意の流路区間の入口のガス組成、温度、圧力により定まる平衡転化率であり、 X_{A1} は流路区間の入口でのメタン転化率を表わす。また X_{A0} は区間出口でのメタン転化率である。なお、メタン転化率とは、供給メタンのうち、改質反応により水素生成に使われたメタンの割合を示すもので、転化率100%とは供給メタンがすべて水素の生成に使われたことを示す。 k_m は、改質反応速度定数であり、 S_v は空間速度であり、(燃料の体積流量) / (触媒に接する流路の空間体積)で表わされる。

従つて出口のメタン転化率である X_{A0} が大きいほどその区間内での改質反応速度が速いことになる。従来の方法では、このうちの k_m である改質反応速度定数に変化をつけることが試みられてきた。

本発明は、 h はそのままにしておき、 S_v の方を変化させることにより反応速度を制御するものである。たとえば、単位電極面積あたりの燃料と触媒との接触面積を小さくすることにより、単位電極面積あたりの触媒と接する燃料の滞留時間が短くなり、このことは、空間速度 S_v を大きくしたと等価となる。

そこで、開口面積の割合を燃料側入口端から出口端に沿って順次、大きくした多孔板を、燃料通路と触媒の間に導入することにより、入口側での S_v は大きくなり、出口側は S_v が小さくなる。その結果、入口端での改質反応は抑制され、逆に出口側での改質反応は促進され、全体として、燃料の流れ方向に改質反応が均一化され、電池内温度分布の均一化が図れる。

〔実施例〕

第1図はこの発明の一実施例による内部改質型燃料電池を示す斜視図である。図において、電解質板1、燃料電極2、酸化剤電極3で構成される単位電池、及び酸化剤供給のための酸化剤通路4

との接触時間が、流れ方向の任意の位置で異なる。もう少し正確に言えば、全面に均一な接触面積を有する場合に比べて入口部付近は、接触時間が短くなり、逆に出口付近は接触時間が長くなる。

したがって、改質反応の反応速度の大きい燃料通路7の入口付近では接触時間が短いため、その間に改質される燃料は減る方向に向かう。

逆に改質反応速度の小さい出口付近では接触時間が長くなるため、改質される燃料は増える方向に向かう。吸熱量は改質された燃料流量に比例することから、燃料の流れ方向に燃料の改質量が均一化し、したがって吸熱量も均一化することから、電池内温度分布が均一化する。

第3図には、単位電極面積あたりの触媒層との接触面積が、電池全面に対し、均一な場合（破線で示す）と燃料の流れ方向に沿って、4区画に分け、入口側から、接触面積を前者の $1/4$ 、 $1/2$ 、 $3/4$ 、 $4/4$ と順に増やした場合（実線で示す）との、セル中央部での燃料側入口端から出口端にかけての温度分布を比較した結果を示す。

の構造は従来と同じである。燃料と酸化剤の分離板5の燃料側に、板状の改質触媒層6が設置され、さらに改質触媒層6の燃料通路7側に極く薄い導電性金属のシートメタル8が触媒層6を覆っている。第2図にこのシートメタルの平面図を示すがシートメタルには穿孔9が施されており、燃料10の流れに沿って入口端11から出口端12にかけて、穿孔の開口比が大きくなっている。燃料通路7は、上記シートメタル8と燃料電極2で構成される空間を流れる。燃料通路7には多孔波板13が備わり燃料電極2を支持するとともに、改質した燃料の一部は多孔板の小孔を通じて燃料電極表面に達する。

次に動作について説明する。従来と同様、燃料通路7にメタンなどの炭化水素と水蒸気が供給されると、改質触媒層との接触により水素、一酸化炭素及び炭酸ガスが生成される。この際、本発明においては、燃料と触媒との接触面積が穿孔の数により、燃料の流れ方向に沿って、増大するようになっているため、単位電極面積あたりの触媒層

これらの温度分布は、いずれも、電気化学反応、改質反応及び伝熱モデルを組み合わせた電池の温度分布解析による計算結果の一例を示すが、明らかに、本実施例による温度分布の改善の効果が表われていることがわかる。

第4図は他の実施例を示す内部改質型燃料電池の一部の斜視図であり、上記実施例では、シートメタルを導入していたが、該シートメタルは用いずに多孔波板13のみで触媒接触面積を制御しようとするものである。多孔波板13は側面15には穴が空いていても空いていなくてもよいが、少なくとも燃料電極3と接する波形凸部14には電極へのガス拡散用の穴があいている必要がある。そして触媒層6と接する波形凹部16には、第5図の波板13の平面図に示すように、燃料10の入口端11から出口端12に向かつて、穿孔数が増加し、結果として開口面積が流れに沿って大きくなる。なお、燃料通路7aは触媒層の接触面積は制御できないが、もう一方の通路7-bでは、穿孔9により接触面積を変えることが可能であり、

全体としてみれば上記実施例と同様に、触媒層の接触面積は燃料下流側ほど増大する。本実施例では上記実施例のようなメタルシート8といった部材が不要となり、さらにコストの低減が図れる。

〔発明の効果〕

以上のように本発明によれば、燃料通路における燃料の流れ方向に、触媒層との接触面積を上記燃料の流れ方向に向かって大きくしたことにより、電池全体で燃料改質反応を均一化でき、その結果、従来より低コストで電池内の温度分布を一様化することができる内部改質型燃料電池が得られる効果がある。

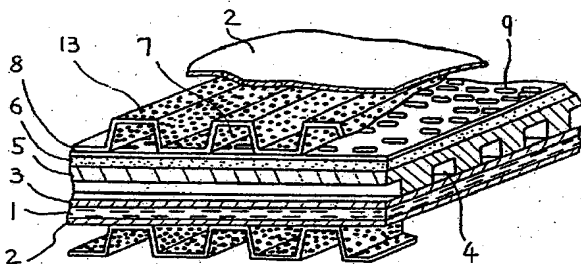
4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明の一実施例による内部改質型燃料電池の一部を示す斜視図、第2図は本発明の実施例に係わるシートメタルの平面図、第3図は本発明の一実施例における効果を示す電解質板温度分布の解析結果、第4図はこの発明の他の実施例の電池の斜視図、第5図は本発明の他の実施例に係わる多孔波板の平面図である。

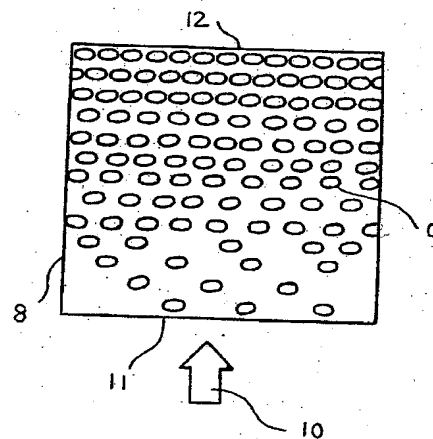
1…電解質板、2…燃料電極、3…酸化剤電極、4…酸化剤通路、5…分離板、6…改質触媒層、7…燃料通路、8…メタルシート、13…多孔波板。

代理人 井理士 小川勝男

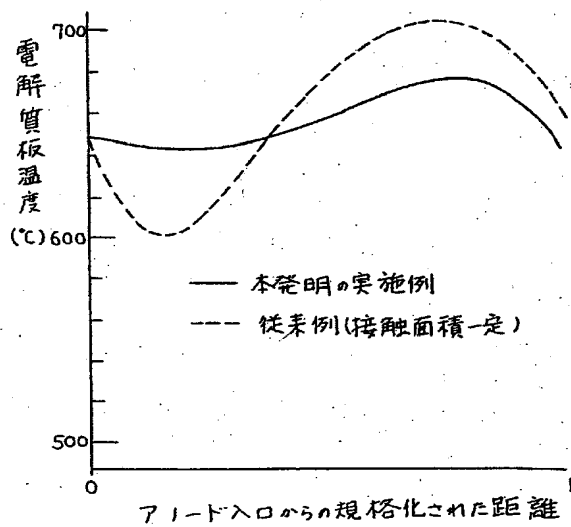
第1図



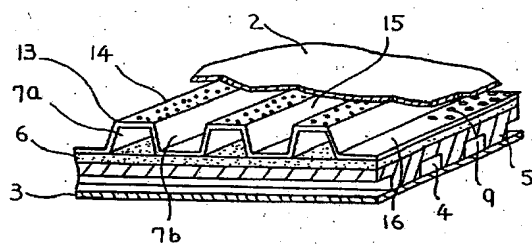
第2図



第3図



第4図



第5図

